

# Document made available under the Patent Cooperation Treaty (PCT)

International application number: PCT/JP05/006420

International filing date: 25 March 2005 (25.03.2005)

Document type: Certified copy of priority document

Document details: Country/Office: JP  
Number: 2004-088909  
Filing date: 25 March 2004 (25.03.2004)

Date of receipt at the International Bureau: 24 June 2005 (24.06.2005)

Remark: Priority document submitted or transmitted to the International Bureau in compliance with Rule 17.1(a) or (b)



World Intellectual Property Organization (WIPO) - Geneva, Switzerland  
Organisation Mondiale de la Propriété Intellectuelle (OMPI) - Genève, Suisse

日 本 国 特 許 庁  
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日  
Date of Application: 2 0 0 4 年 3 月 2 5 日

出 願 番 号  
Application Number: 特 願 2 0 0 4 - 0 8 8 9 0 9

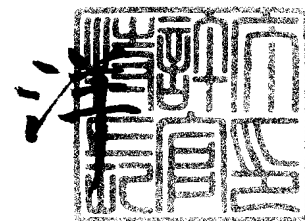
パリ条約による外国への出願  
に用いる優先権の主張の基礎  
となる出願の国コードと出願  
番号  
J P 2 0 0 4 - 0 8 8 9 0 9  
The country code and number  
of your priority application,  
to be used for filing abroad  
under the Paris Convention, is

出 願 人  
Applicant(s): 保土谷化学工業株式会社  
国立大学法人信州大学

2 0 0 5 年 6 月 8 日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

小 川



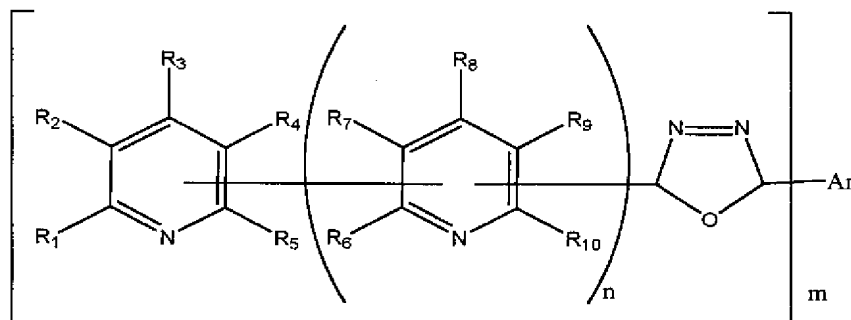
【書類名】	特許願
【整理番号】	P0411EL3
【あて先】	特許庁長官 今井 康夫 殿
【国際特許分類】	H05B 33/12 H05B 33/14 C07D271/10
【発明者】	
【住所又は居所】	茨城県つくば市御幸が丘45番地 保土谷化学工業株式会社筑波事業所内
【氏名】	三木 鉄蔵
【発明者】	
【住所又は居所】	長野県上田市常田3丁目15番1号 信州大学繊維学部内
【氏名】	谷口 彬雄
【発明者】	
【住所又は居所】	長野県上田市常田3丁目15番1号 信州大学繊維学部内
【氏名】	市川 結
【発明者】	
【住所又は居所】	長野県上田市常田3丁目15番1号 信州大学繊維学部内
【氏名】	古川 顕治
【発明者】	
【住所又は居所】	長野県上田市常田3丁目15番1号 信州大学繊維学部内
【氏名】	川口 太郎
【特許出願人】	
【識別番号】	000005315
【住所又は居所】	神奈川県川崎市幸区堀川町66番地2
【氏名又は名称】	保土谷化学工業株式会社
【代表者】	岡本 ▲昂▼
【電話番号】	044-549-6636
【特許出願人】	
【識別番号】	597100974
【住所又は居所】	長野県松本市旭3丁目1番1号
【氏名又は名称】	信州大学
【代表者】	小宮山 淳
【電話番号】	0263-37-3041
【手数料の表示】	
【予納台帳番号】	045621
【納付金額】	21,000円
【提出物件の目録】	
【物件名】	特許請求の範囲 1
【物件名】	明細書 1
【物件名】	図面 1
【物件名】	要約書 1

【書類名】特許請求の範囲

【請求項 1】

一対の電極とその間に挟まれた少なくとも一層の有機層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子において、一般式（1）で表される複数の連結したピリジル基で置換されたオキサジアゾール環構造を有する化合物が、少なくとも一つの有機層の構成材料として用いられていることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【化 1】



〔式中、Arは無置換もしくは置換された芳香族炭化水素基、無置換もしくは置換された芳香族複素環基または無置換もしくは置換された縮合多環芳香族基を表し、R1、R2、R3、R4、R5は、それらのうちの1つが結合基であり、他はそれぞれ独立に水素原子、フッ素原子、シアノ基、アルキル基、トリフルオロメチル基、フェニル基、トリル基、ナフチル基を表し、R6、R7、R8、R9、R10は、それらのうちの2つが結合基であり、他はそれぞれ独立に水素原子、フッ素原子、シアノ基、アルキル基、トリフルオロメチル基、フェニル基、トリル基、ナフチル基を表し、mは1～3の整数を表し、nは1～4の整数を表す。〕

【請求項 2】

一般式（1）中におけるn＝1であり、複数の連結したピリジル基がジピリジル基である請求項1記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 3】

一般式（1）中におけるn＝2であり、複数の連結したピリジル基がターピリジル基である請求項1記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 4】

一般式（1）で表される化合物が、電子輸送層中に、少なくとも一つの構成材料として用いられていることを特徴とする請求項1記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 5】

一般式（1）で表される化合物が、正孔阻止層中に、少なくとも一つの構成材料として用いられていることを特徴とする請求項1記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 6】

一般式（1）で表される化合物が、発光層中に、少なくとも一つの構成材料として用いられていることを特徴とする請求項1記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【書類名】 明細書

【発明の名称】 有機エレクトロルミネッセンス素子

【技術分野】

【0001】

本発明は、各種の表示装置に好適な自発光素子である有機エレクトロルミネッセンス（EL）素子に関するものであり、詳しくは複数の連結したピリジル基で置換されたオキサジアゾール環構造を有する化合物を用いた有機EL素子に関するものである。

【背景技術】

【0002】

有機EL素子は自己発光性素子であるため、液晶素子にくらべて明るく視認性に優れ、鮮明な表示が可能であるため、活発な研究がなされてきた。

【0003】

1987年にイーストマン・コダック社のC. W. Tangらは各種の役割を各材料に分担した積層構造素子を開発することにより有機材料を用いた有機EL素子を実用的なものにした。彼らは電子を輸送することのできる蛍光体と正孔を輸送することのできる有機物とを積層し、両方の電荷を蛍光体の層の中に注入して発光させることにより、10V以下の電圧で1000cd/m<sup>2</sup>以上の高輝度が得られるようになった（例えば、特許文献1、特許文献2参照）。

【0004】

【特許文献1】 特開平8-48656号公報

【特許文献2】 特許第3194657号公報

【0005】

現在まで、有機EL素子の実用化のために多くの改良がなされ、各種の役割をさらに細分化して、基板上に順次に、陽極、正孔注入層、正孔輸送層、発光層、電子輸送層、電子注入層、陰極を設けた電界発光素子によって高効率と耐久性が達成されている（例えば、非特許文献1参照）。

【0006】

【非特許文献1】 応用物理学会第9回講習会予稿集55～61ページ（2001）

【0007】

また発光効率の更なる向上を目的として三重項励起子の利用が試みられ、燐光発光体の利用が検討されている（例えば、非特許文献2参照）。

【0008】

【非特許文献2】 応用物理学会第9回講習会予稿集23～31ページ（2001）

【0009】

発光層は、一般的にホスト材料と称される電荷輸送性の化合物に、蛍光体や燐光発光体をドープして作成することもできる。上記の講習会予稿集に記載されているように、有機EL素子における有機材料の選択は、その素子の効率や耐久性など諸特性に大きな影響を与える。

【0010】

有機EL素子においては、両電極から注入された電荷が発光層で再結合して発光が得られるが、電子の移動速度より正孔の移動速度が速いため、正孔の一部が発光層を通り抜けてしまうことによる効率低下が問題となる。そのため電子の移動速度の速い電子輸送材料が求められている。

【0011】

代表的な発光材料であるトリス（8-ヒドロキシキノリン）アルミニウム（以後、Alqと略称する）は電子輸送材料としても一般的に用いられるが、電子の移動速度は遅いと言われている。そのために、移動速度の速い材料として、2-（4-ピフェニル）-5-（4-tert-ブチルフェニル）-1,3,4-オキサジアゾール（以後、PBDと略称する）などが提案された（例えば、非特許文献3参照）。

【0012】

【非特許文献3】 J p n . J . A p p l . P h y s . , 27 , L 269 ( 1988 )

【0013】

しかし、PBDは結晶化を起こしやすいなど、薄膜状態における安定性に乏しいことが指摘され、種々のオキサジアゾール誘導体が提案されている（特許文献3、4、5）。

【0014】

【特許文献3】特許第2721442号公報

【特許文献4】特許第3316236号公報

【特許文献5】特許第3486994号公報

【0015】

これらを用いた電子輸送層は、PBDと比較した安定性は改善されたがまだ充分であるとは言えず、正孔の移動速度との均衡という観点では電子の移動速度がまだ不十分であり、十分に機能しているとは言えなかった。そのため、安定性の良好なAlqが電子輸送材料として用いられることが多かったが、満足できる素子特性が得られていなかった。

【0016】

また正孔の一部が発光層を通り抜けてしまうことを防ぎ、発光層での電荷再結合の確率を向上させる方策には、正孔阻止層を挿入する方法がある。正孔阻止層に適した材料としてはこれまでに、トリアゾール誘導体（例えば、特許文献6参照）やバソクプロイン（以後、BCPと略称する）、アルミニウムの混合配位子錯体（BA1q）（例えば、非特許文献2参照）などが提案されている。

【0017】

【特許文献6】特許第2734341号公報

【0018】

しかし、いずれの材料も膜の安定性が不足していたり、もしくは正孔を阻止する機能が不十分である。現在一般的に用いられている正孔阻止材料はBCPであるが、十分に安定な材料とは言えないため、正孔阻止層として十分に機能しているとは言えず、満足できる素子特性が得られていなかった。

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0019】

本発明の目的は、電子輸送性能に優れ、正孔阻止能力を有し、薄膜状態での安定性が高い化合物を用いて、高効率、高耐久性の有機EL素子を提供することにある。本発明に適した素子の物理的な特性としては、（1）発光効率が低いこと、（2）発光開始電圧が低いこと、（3）実用駆動電圧が低いこと、（4）最大発光輝度が高いこと、を挙げることができる。

【課題を解決するための手段】

【0020】

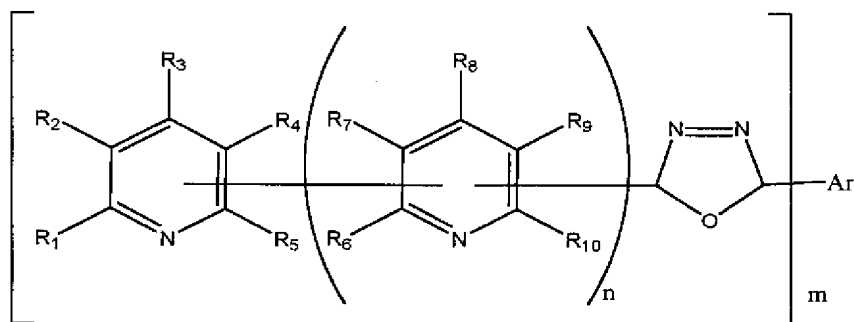
そこで本発明者らは上記の目的を達成するために、電子親和性であるピリジン環の窒素原子が金属に配位する能力を有していることに着目して、複数の連結したピリジン環をオキサジアゾール環に連結した新規な化合物を用いて、種々の有機EL素子を試作し、素子の特性評価を鋭意行なった結果、本発明を完成するに至った。

【0021】

すなわち本発明は、一対の電極とその間に挟まれた少なくとも一層の有機層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子において、一般式（1）で表される複数の連結したピリジル基で置換されたオキサジアゾール環構造を有する化合物が、少なくとも一つの有機層の構成材料として用いられていることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子である。

【0022】

【化1】



【0023】

〔式中、Arは無置換もしくは置換された芳香族炭化水素基、無置換もしくは置換された芳香族複素環基または無置換もしくは置換された縮合多環芳香族基を表し、R1、R2、R3、R4、R5は、それらのうちの1つが結合基であり、他はそれぞれ独立に水素原子、フッ素原子、シアノ基、アルキル基、トリフルオロメチル基、フェニル基、トリル基、ナフチル基を表し、R6、R7、R8、R9、R10は、それらのうちの2つが結合基であり、他はそれぞれ独立に水素原子、フッ素原子、シアノ基、アルキル基、トリフルオロメチル基、フェニル基、トリル基、ナフチル基を表し、mは1～3の整数を表し、nは1～4の整数を表す。〕

【0024】

一般式(1)中の基Arである、芳香族炭化水素基、芳香族複素環基、縮合多環芳香族基としては具体的に次のような基を挙げることができる。フェニル基、ピフェニル基、ターフェニル基、テトラキスフェニル基、スチリル基、ナフチル基、アントリル基、アセナフテニル基、フルオレニル基、フェナントリル基、インデニル基、ピレニル基、ピリジル基、ピリミジル基、フラニル基、ピロニル基、チオフェニル基、キノリル基、ベンゾフラニル基、ベンゾチオフェニル基、インドリル基、カルバゾリル基、ベンゾオキサゾリル基、キノキサリル基、ベンゾイミダゾリル基、ピラゾリル基、ジベンゾフラニル基、ジベンゾチオフェニル基。

【0025】

またこれらの基Arの環に対する置換基としては具体的に次のような例を挙げることができる。フッ素原子、塩素原子、シアノ基、水酸基、ニトロ基、アルキル基、アルコキシ基、アミノ基、置換アミノ基、トリフルオロメチル基、フェニル基、トリル基、ナフチル基、アラルキル基。

【0026】

一般式(1)中の連結したピリジル基としては、具体的にジピリジル基、ターピリジル基を挙げることができる。

【0027】

本発明の一般式(1)で表される、複数の連結したピリジル基で置換されたオキサジアゾール環構造を有する化合物は、有機EL素子の電子輸送層の構成材料として使用することができる。従来の材料に比べて電子の移動速度の高い材料を用いることにより、電子輸送層から発光層への電子輸送効率が向上して、発光効率が向上すると共に、駆動電圧が低下して、有機EL素子の耐久性が向上するという作用を有する。

【0028】

本発明の一般式(1)で表される、複数の連結したピリジル基で置換されたオキサジアゾール環構造を有する化合物は、有機EL素子の正孔阻止層の構成材料としても使用することができる。優れた正孔の阻止能力と共に従来の材料に比べて電子輸送性に優れ、かつ薄膜状態の安定性の高い材料を用いることにより、高い発光効率を有しながら、駆動電圧が

低下し、電流耐性が改善されて、有機EL素子の最大発光輝度が向上するという作用を有する。

#### 【0029】

本発明の有機EL素子は、発光層として単独の発光材料を用いることができるが、ドーパントと呼ばれている蛍光体や燐光発光体を、ホスト材料と称されている電子輸送性の化合物に担持させて用いることもできる。

#### 【0030】

本発明の一般式(1)で表される、複数の連結したピリジル基で置換されたオキサジアゾール環構造を有する化合物は、有機EL素子の発光層の構成材料としても使用することができる。従来の材料に比べて電子輸送性に優れ、かつバンドギャップの広い材料を発光層のホスト材料として用いることにより、駆動電圧が低下し、発光効率が改善された有機EL素子を実現できるという作用を有する。

#### 【0031】

本発明の有機EL素子は、従来の電子輸送材料より電子の移動が速く、優れた正孔の阻止能力を有し、かつ薄膜状態が安定な、複数の連結したピリジル基で置換されたオキサジアゾール環構造を有する化合物を用いていたため、高効率、高耐久性を実現することを可能にしたのである。

#### 【発明の効果】

#### 【0032】

本発明は、電子輸送層、正孔阻止層、或いは発光層の構成材料として、複数の連結したピリジル基で置換されたオキサジアゾール環構造を有する化合物を用いて作製した有機EL素子であり、従来の有機EL素子の発光効率と耐久性を格段に改良することができた。

#### 【発明を実施するための最良の形態】

#### 【0033】

本発明の有機EL素子に用いた複数の連結したピリジル基で置換されたオキサジアゾール環構造を有する有機化合物は、新規な化合物である。これらの化合物は例えば、6-(2H-テトラゾール-5-イル)-2, 2'-ビピリジンや、相当するターピリジンを種々のクロロホルメートと縮合することによって合成することができる。これらの化合物の精製はカラム精製により行うことができる。

#### 【0034】

本発明の有機EL素子の構造としては、基板上に順次に、陽極、正孔注入層、正孔輸送層、発光層、正孔阻止層、電子輸送層、陰極からなるもの、また、電子輸送層と陰極の間に電子注入層を有するものが挙げられる。これらの多層構造においては有機層を何層か省略することが可能であり、例えば基板上に順次に、陽極、正孔輸送層、発光層、電子輸送層、陰極とすることもできる。

#### 【0035】

本発明の陽極としては、ITOや金のような仕事関数の大きな電極材料が用いられる。正孔注入層としては銅フタロシアニン(CuPc)のほか、スターバースト型のトリフェニルアミン誘導体などの材料や塗布型の材料を用いることができる。

#### 【0036】

正孔輸送層にはベンジジン誘導体であるN, N'-ジフェニル-N, N'-ジ(m-トリル)-ベンジジン(以後、TPDと略称する)やN, N'-ジフェニル-N, N'-ジ( $\alpha$ -ナフチル)-ベンジジン(以後、NPДと略称する)、種々のトリフェニルアミン4量体などを用いることができる。また、正孔の注入・輸送層として、PEDOT/PSSなどの塗布型の高分子材料を用いることができる。

#### 【0037】

本発明の発光層、正孔阻止層、電子輸送層としては複数の連結したピリジル基で置換されたオキサジアゾール環構造を有する有機化合物のほか、アルミニウムの錯体、オキサゾール誘導体、カルバゾール誘導体、ポリジアルキルフルオレン誘導体などを用いることができる。



#### 【0038】

アルミニウムの錯体、スチリル誘導体などの従来の発光材料を発光層に用い、複数の連結したピリジル基で置換されたオキサジアゾール環構造を有する有機化合物を正孔阻止層、電子輸送層として用いることにより、高性能の有機EL素子を作製することができる。また、発光層のホスト材料として用いて、例えば、キナクリドン、クマリン、ルブレンなどの蛍光体、或いはフェニルピリジンのイリジウム錯体などの燐光発光体であるドーパントを添加することによっても、高性能の有機EL素子を作製することができる。

#### 【0039】

さらに、複数の連結したピリジル基で置換されたオキサジアゾール環構造を有する有機化合物に、従来からの電子輸送性の材料を重層、或いは共蒸着して電子輸送層として用いることができる。

#### 【0040】

本発明の有機EL素子は電子注入層を有していても良い。電子注入層としてはフッ化リチウムなどを用いることができる。陰極としては、アルミニウムマグネシウム電極のような、アルミニウムとマグネシウムや銀の合金のような仕事関数の低い電極材料が用いられる。

#### 【実施例1】

##### 【0041】

以下、本発明の実施の形態について、実施例により具体的に説明するが、本発明は、その要旨を越えない限り、以下の実施例に限定されるものではない。

##### 【合成例1】 6-(2H-テトラゾール-5-イル)-2, 2'-ビピリジンの合成

DMF 50 ml に 6-シアノ-2, 2'-ビピリジン 10.0 g とアジ化ナトリウム 5.4 g、塩化アンモニウム 4.4 g を加え、100℃にて6時間攪拌を行った。室温まで冷却後、反応溶液を20%塩酸水溶液 500 ml 中に注ぎ、析出した白色固体を吸引ろ過により取り出し、水洗した。80℃で20時間真空乾燥して、11.6 g の白色粉体を得た。

#### 【実施例2】

##### 【0042】

【合成例2】 1, 3-ビス〔2-(2, 2'-ビピリジン-6-イル)-1, 3, 4-オキサジアゾール-5-イル〕ベンゼン（以後、BpyOXDmと略称する）の合成

【合成例1】で合成した、テトラゾイルビピリジンである中間体 0.63 g を脱水ピリジン 10 ml に溶解させ、二塩化イソフタロイル 0.29 g をゆっくりと加えた。115℃に加温して6時間還流攪拌を行った。室温まで冷却後、反応溶液を水中に注ぎ、析出した白色固体を吸引ろ過により取り出し、水洗した。80℃で20時間真空乾燥して、白色の粗製物を得た。カラムクロマトグラフにより精製して、0.62 g の目的物を得た。

#### 【実施例3】

##### 【0043】

【合成例3】 1, 4-ビス〔2-(2, 2'-ビピリジン-6-イル)-1, 3, 4-オキサジアゾール-5-イル〕ベンゼン（以後、BpyOXDpと略称する）の合成

【合成例1】で合成した、テトラゾイルビピリジンである中間体 0.67 g を脱水ピリジン 10 ml に溶解させ、二塩化テレフタロイル 0.32 g を加えた。110℃に加温して5時間還流攪拌を行った。室温まで冷却後、反応溶液を水中に注ぎ、析出した白色固体を吸引ろ過により取り出し、水洗した。80℃で20時間真空乾燥して、白色の粗製物を得た。カラムクロマトグラフにより精製して、0.58 g の目的物を得た。

#### 【実施例4】

##### 【0044】

【合成例4】 2, 6-ビス〔2-(2, 2'-ビピリジン-6-イル)-1, 3, 4-オキサジアゾール-5-イル〕ピリジン（以後、BpyOXDmPyと略称する）の合成

【合成例1】で合成した、テトラゾイルビピリジンである中間体 0.50 g を脱水ピリジン 10 ml に溶解させ、2, 6-ピリジンジカルボニルジクロライド 0.26 g を加え

た。110℃に加熱して9時間還流攪拌を行った。室温まで冷却後、反応溶液を水中に注ぎ、析出した白色固体を吸引ろ過により取り出し、水洗した。80℃で20時間真空乾燥して、白色の粗製物を得た。カラムクロマトグラフにより精製して、0.12gの目的物を得た。

#### 【実施例5】

##### 【0045】

有機EL素子は、【図1】に示すように、ガラス基板1上に透明陽極2としてITO電極をあらかじめ形成したものの上に、正孔輸送層4、発光層5、電子輸送層7、陰極（アルミニウムマグネシウム電極）8の順に蒸着して作製した。

膜厚150nmのITOを成膜したガラス基板1を有機溶媒洗浄後に、酸素プラズマ処理にて表面を洗浄した。これを、真空蒸着機内に取り付け0.001Pa以下まで減圧した。

##### 【0046】

続いて、正孔輸送層4として、NPDを蒸着速度6nm/minで約50nm形成した。次に、発光層5としてAlqを蒸着速度6nm/minで約20nm形成した。この発光層4の上に、電子輸送層7として【合成例2】の化合物であるBpyOXDmを蒸着速度6nm/minで約30nm形成した。ここまでの蒸着をいずれも真空を破らずに連続して行なった。最後に、陰極蒸着用のマスクを挿入して、MgAgの合金を10：1の比率で約200nm蒸着して陰極8を形成した。作製した素子は、真空デシケーター中に保存し、大気中、常温で特性測定を行なった。

##### 【0047】

このように形成された本発明の有機EL素子の特性を100cd/m<sup>2</sup>の発光が得られる印加電圧、200mA/cm<sup>2</sup>の電流密度を負荷した場合の発光輝度、発光輝度/電圧で定義される発光効率で評価した。

##### 【0048】

有機EL素子に直流電圧を印加した結果、3.7Vから100cd/m<sup>2</sup>の発光が見られ、7.8Vでは200mA/cm<sup>2</sup>の電流が流れ、11900cd/m<sup>2</sup>の安定な緑色発光を得た。この輝度での発光効率は6.0cd/Aと高効率であった。

#### 【実施例6】

##### 【0049】

【図1】の素子において、電子輸送層7の材料を【実施例5】で用いたBpyOXDmから、【合成例4】の化合物であるBpyOXDmPyに代えて、【実施例5】と同じ条件で有機EL素子を作製してその特性を調べた。4.0Vから100cd/m<sup>2</sup>の発光が見られ、8.5Vでは200mA/cm<sup>2</sup>の電流が流れ、11500cd/m<sup>2</sup>の安定な緑色発光を得た。この輝度での発光効率は5.8cd/Aと高効率であった。

##### 【0050】

#### 【比較例1】

比較のために、電子輸送層7の材料をAlqに代えて、【実施例5】と同じ条件で有機EL素子を作製してその特性を調べた。すなわち発光層兼電子輸送層3及び4としてAlq3を蒸着速度6nm/minで約50nm形成した。7.2Vから100cd/m<sup>2</sup>の発光が見られ、13.3Vでは200mA/cm<sup>2</sup>の電流が流れ、9600cd/m<sup>2</sup>の緑色発光を得た。この輝度での発光効率は4.6cd/Aであった。

##### 【0051】

これらの結果から明らかなように、複数の連結したピリジル基で置換されたオキサジアゾール環構造を有する化合物を用いた有機EL素子は、一般的な電子輸送材料として用いられているAlqを用いた素子と比較して、発光効率に優れており、さらに駆動電圧の顕著な低下が達成できるため、耐久性に優れていることがわかった。

#### 【実施例7】

##### 【0052】

【図2】に示すような有機EL素子を、ガラス基板1上に透明陽極2としてITO電極

をあらかじめ形成したものの上に、正孔輸送層 4、発光層 5、正孔阻止層 6、電子輸送層 7、陰極（アルミニウムマグネシウム電極）8 の順に蒸着して作製した。

膜厚 150 nm の ITO を成膜したガラス基板 1 を有機溶媒洗浄後に、酸素プラズマ処理にて表面を洗浄した。これを、真空蒸着機内に取り付け 0.001 Pa 以下まで減圧した。

#### 【0053】

続いて、正孔輸送層 4 として、TPD を蒸着速度 6 nm/min で約 50 nm 形成した。次に、発光層 5 として Alq を蒸着速度 6 nm/min で約 30 nm 形成した。この発光層 5 の上に、正孔阻止層 6 として本発明である BpyOXDm を蒸着速度 6 nm/min で約 20 nm 形成した。さらに、電子輸送層 7 として Alq を蒸着速度 6 nm/min で約 20 nm 形成した。ここまでの蒸着をいずれも真空を破らずに連続して行なった。最後に、陰極蒸着用のマスクを挿入して、MgAg の合金を 10:1 の比率で約 200 nm 蒸着して陰極 8 を形成した。作製した素子は、真空デシケーター中に保存し、大気中常温で特性測定を行なった。

#### 【0054】

このように形成された本発明の有機 EL 素子に直流電圧を印加した結果、5.7 V から 100 cd/m<sup>2</sup> の発光が見られ、11.4 V では 200 mA/cm<sup>2</sup> の電流が流れ、11600 cd/m<sup>2</sup> の安定な緑色発光を得た。この輝度での発光効率は 6.0 cd/A と高効率であった。さらに印加電圧を増大させて破過前の最大輝度 22050 cd/m<sup>2</sup> を得た。測定された最大輝度は素子の電気的な安定性を反映しているため、有機 EL 素子の耐久性の指標となる。

#### 【0055】

##### 【比較例 2】

比較のために、正孔阻止層 6 の材料を BCP に代えて、実施例 3 と同じ条件で有機 EL 素子を作製してその特性を調べた。すなわち正孔阻止層 6 として BCP を蒸着速度 6 nm/min で約 20 nm 形成した。12.0 V から 100 cd/m<sup>2</sup> の発光が見られ、19.4 V では 200 mA/cm<sup>2</sup> の電流が流れ、10900 cd/m<sup>2</sup> の緑色発光を得た。この輝度での発光効率は 5.3 cd/A であった。破過前の最大輝度は 12790 cd/m<sup>2</sup> であった。

#### 【0056】

この結果から明らかなように、複数の連結したピリジル基で置換されたオキサジアゾール環構造を有する化合物を用いた有機 EL 素子は、一般的な正孔阻止材料として用いられている BCP を用いた素子と比較して、耐久性に優れていることがわかった。さらに、高輝度発光に適した有機 EL 素子であることがわかった。

##### 【実施例 8】

#### 【0057】

【図 3】に示すような有機 EL 素子を、ガラス基板 1 上に透明陽極 2 として ITO 電極をあらかじめ形成したものの上に、正孔注入層 3、正孔輸送層 4、発光層 5、正孔阻止層 6、電子輸送層 7、陰極（アルミニウムマグネシウム電極）8 の順に蒸着して作製した。

膜厚 150 nm の ITO を成膜したガラス基板 1 を有機溶媒洗浄後に、酸素プラズマ処理にて表面を洗浄した。これを、真空蒸着機内に取り付け 0.001 Pa 以下まで減圧した。

#### 【0058】

続いて、正孔注入層 3 として、CuPc を蒸着速度 6 nm/min で約 15 nm 形成した。その上に正孔輸送層 4 として、TPD を蒸着速度 6 nm/min で約 50 nm 形成した。ここまでの蒸着をいずれも真空を破らずに連続して行なった。ボートを入れ替えて再び減圧にして、正孔輸送層 4 の上に、発光層 5 として Alq を蒸着速度 6 nm/min で約 20 nm 形成した。この発光層 5 の上に、正孔阻止層兼電子輸送層 6 及び 7 として本発明である BpyOXDm を蒸着速度 6 nm/min で約 30 nm 形成した。最後に、大気圧に戻して陰極蒸着用のマスクを挿入し、再び減圧にして、MgAg の合金を 10:1 の比

率で約 200 nm 蒸着して陰極 8 を形成した。作成した素子作製は、真空デシケーター中に保存し、大気中、常温で特性測定を行なった。

#### 【0059】

このように形成された本発明の有機 EL 素子に直流電圧を印加した結果、3.8 V から 100 cd/m<sup>2</sup> の緑色発光が見られた。この素子の破過前の最大輝度は 40660 cd/m<sup>2</sup> であった。

#### 【0060】

##### 【比較例 3】

比較のために、本発明である BpyOXDm を Alq に代えて、実施例 4 と同じ条件で有機 EL 素子を作製してその特性を調べた。すなわち発光層兼正孔阻止層兼電子輸送層 5、6 及び 7 として Alq を蒸着速度 6 nm/min で約 50 nm 形成した。7.2 V から 100 cd/m<sup>2</sup> の緑色発光が見られた。この素子の破過前の最大輝度は 14990 cd/m<sup>2</sup> であった。

#### 【0061】

この結果から明らかなように、複数の連結したピリジル基で置換されたオキサジアゾール環構造を有する化合物を用いた有機 EL 素子は耐久性に優れており、高輝度発光に適した有機 EL 素子であることがわかった。

##### 【産業上の利用可能性】

#### 【0062】

電子の移動速度が速く薄膜状態が安定な複数の連結したピリジル基で置換されたオキサジアゾール環構造を有する化合物を用いて本発明の有機 EL 素子を作製することにより、駆動電圧を格段に低下させることができ、耐久性を改善させることができる。また、本発明の有機 EL 素子は高輝度発光に適しており、照明や有機半導体レーザーの用途への展開が可能となった。

##### 【図面の簡単な説明】

#### 【0063】

【図 1】 実施例 5 の EL 素子構成を示した図である。

【図 2】 実施例 7 の EL 素子構成を示した図である。

【図 3】 実施例 8 の EL 素子構成を示した図である。

【図 4】 実施例 5 と比較例 1 の電圧／電流密度特性を比較したグラフである。

【図 5】 実施例 5 と比較例 1 の電圧／輝度特性を比較したグラフである。

【図 6】 実施例 5 と比較例 1 の電流密度／輝度特性を比較したグラフである。

【図 7】 実施例 5 と比較例 1 の電流密度／電流効率を比較したグラフである。

【図 8】 実施例 7 と比較例 2 の電圧／電流密度特性を比較したグラフである。

【図 9】 実施例 7 と比較例 2 の電圧／輝度特性を比較したグラフである。

【図 10】 実施例 7 と比較例 2 の電流密度／輝度特性を比較したグラフである。

【図 11】 実施例 7 と比較例 2 の電流密度／電流効率を比較したグラフである。

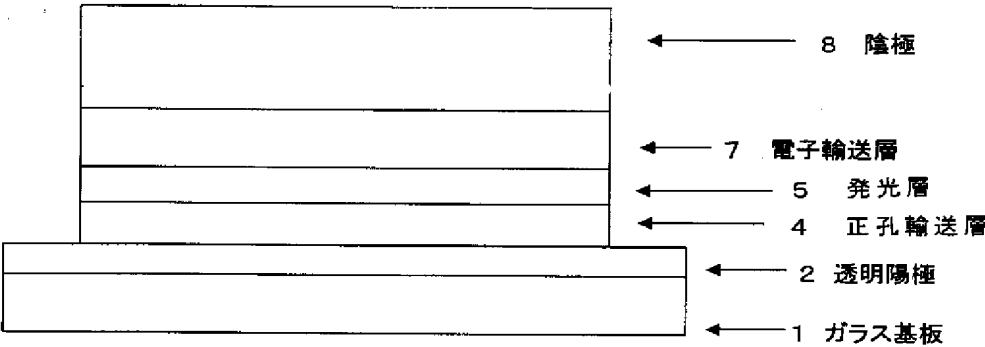
##### 【符号の説明】

#### 【0064】

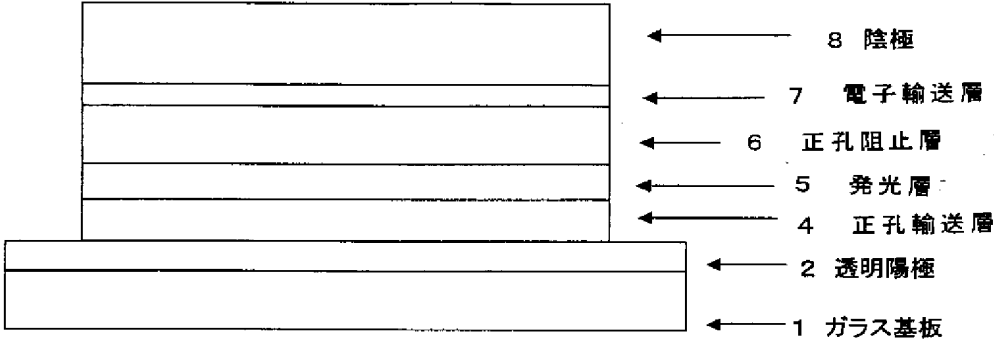
- 1 ガラス基板
- 2 透明陽極
- 3 正孔注入層
- 4 正孔輸送層
- 5 発光層
- 6 正孔阻止層
- 7 電子輸送層
- 8 陰極

【書類名】 図面

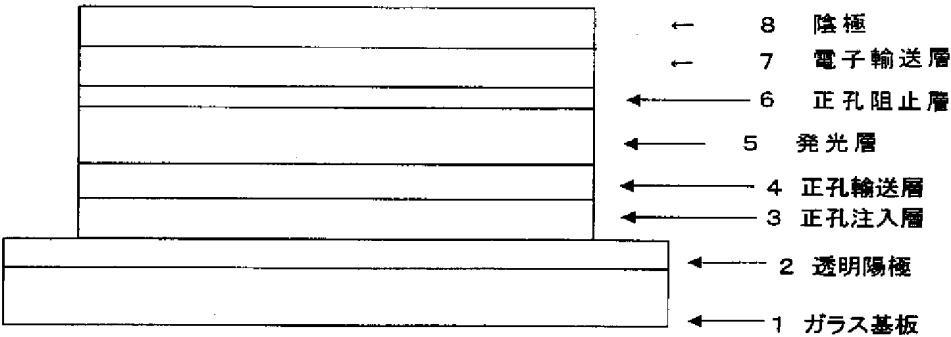
【図 1】



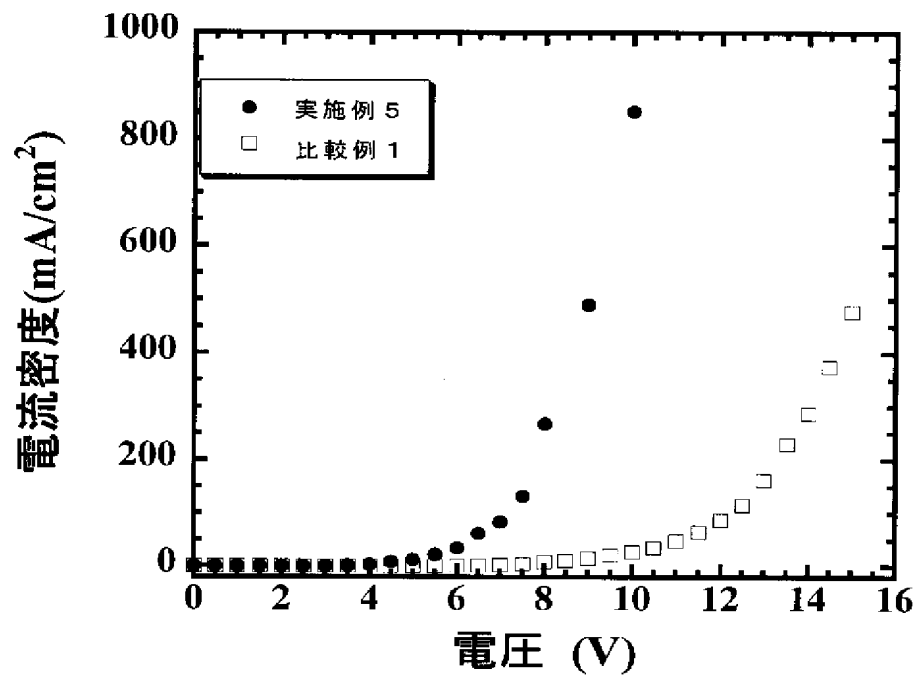
【図 2】



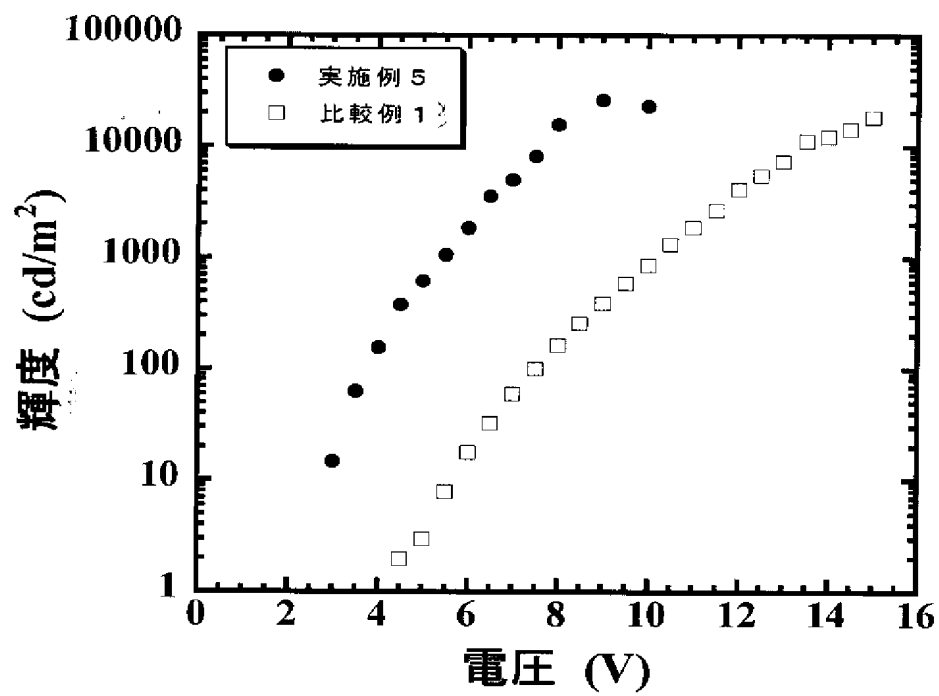
【図 3】



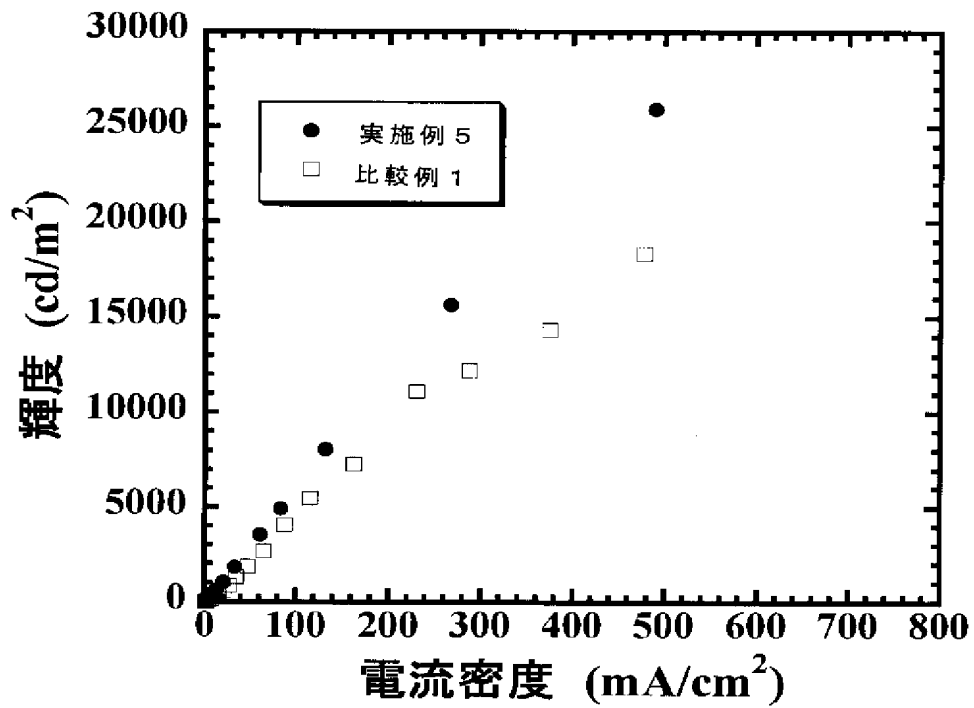
【図 4】



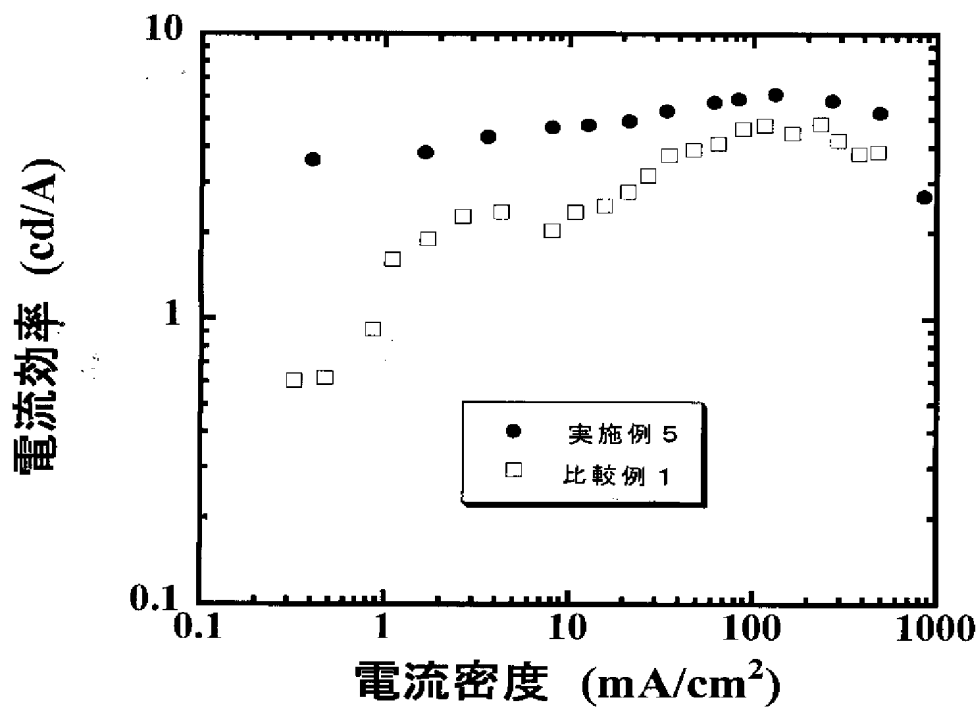
【図 5】



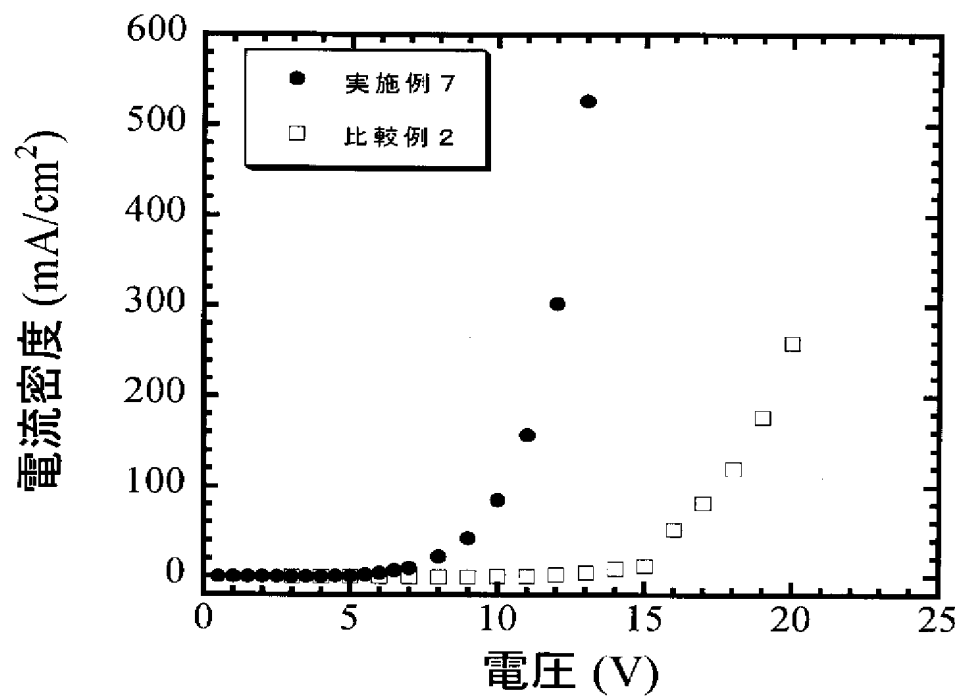
【圖 6】



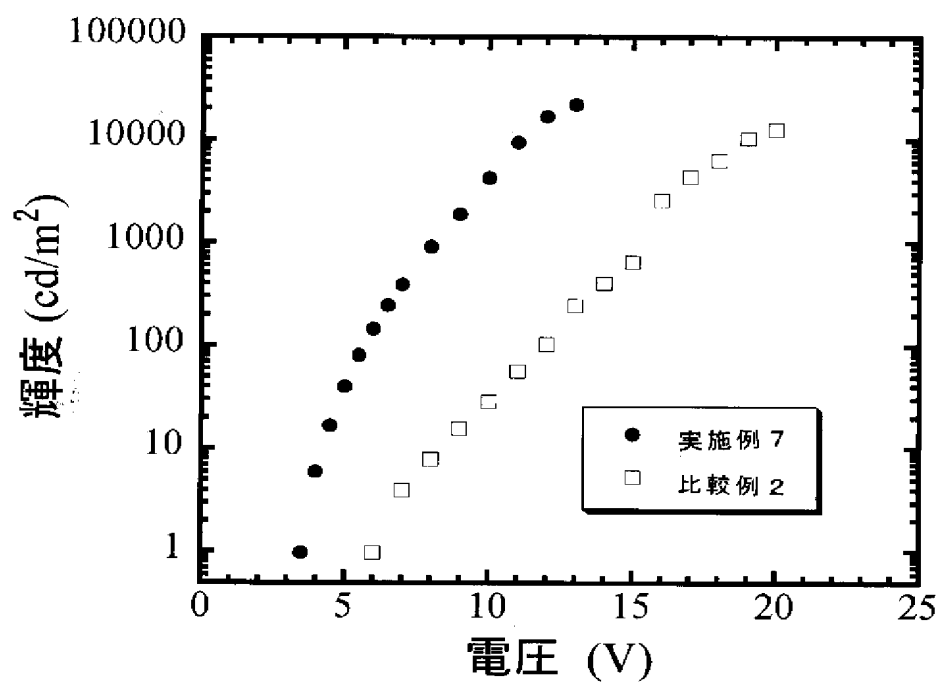
【圖 7】



【図 8】

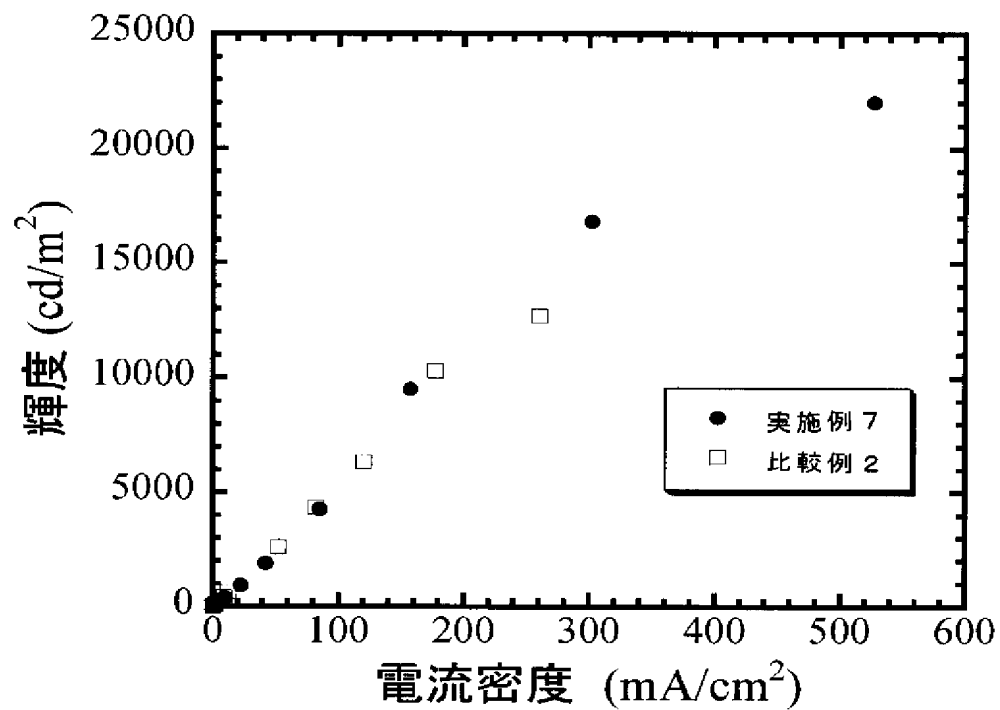


【図 9】

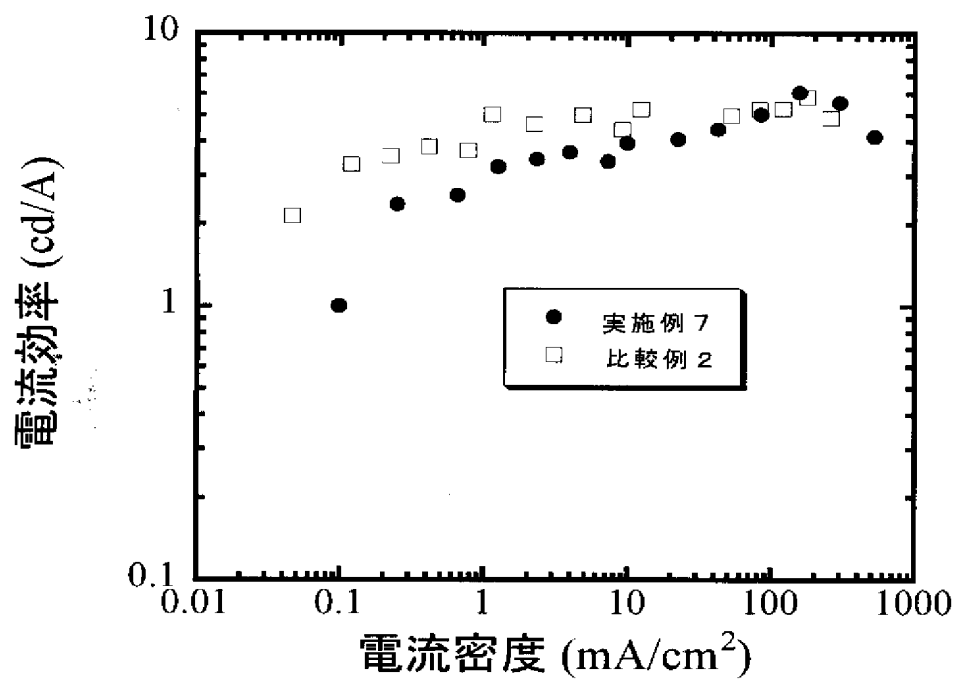




【圖 1 0】



【圖 1 1】



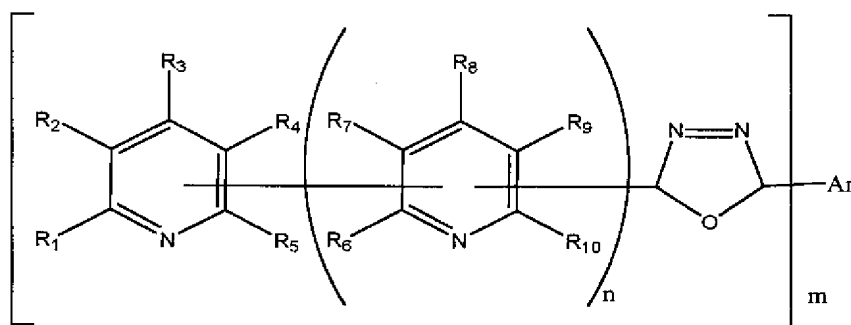
【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 電子輸送性能に優れ、正孔阻止能力を有し、薄膜状態での安定性が高い化合物を用いて、高効率、高耐久性の有機EL素子を提供すること。物理的な特性として（１）発光効率が低いこと、（２）発光開始電圧が低いこと、（３）実用駆動電圧が低いこと、（４）最大発光輝度が高いこと、を備えた有機EL素子を提供すること。

【解決手段】 一対の電極とその間に挟まれた少なくとも一層の有機層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子において、一般式（１）で表される複数の連結したピリジル基で置換されたオキサジアゾール環構造を有する化合物が、少なくとも一つの有機層の構成材料として用いられていることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【化１】



〔式中、Arは無置換もしくは置換された芳香族炭化水素基、無置換もしくは置換された芳香族複素環基または無置換もしくは置換された縮合多環芳香族基を表し、R1、R2、R3、R4、R5は、それらのうちの1つが結合基であり、他はそれぞれ独立に水素原子、フッ素原子、シアノ基、アルキル基、トリフルオロメチル基、フェニル基、トリル基、ナフチル基を表し、R6、R7、R8、R9、R10は、それらのうちの2つが結合基であり、他はそれぞれ独立に水素原子、フッ素原子、シアノ基、アルキル基、トリフルオロメチル基、フェニル基、トリル基、ナフチル基を表し、mは1～3の整数を表し、nは1～4の整数を表す。〕

【書類名】	手続補正書
【提出日】	平成16年 6月 1日
【あて先】	特許庁長官 殿
【事件の表示】	
【出願番号】	特願2004- 88909
【補正をする者】	
【住所又は居所】	長野県松本市旭三丁目 1 番 1 号
【氏名又は名称】	国立大学法人信州大学
【代表者】	小宮山 淳
【発送番号】	035217
【手続補正1】	
【補正対象書類名】	特許願
【補正対象項目名】	特許出願人
【補正方法】	追加
【補正の内容】	
【その他】	本件手続をしたことに相違ありません。

【書類名】 出願人名義変更届（一般承継）  
【提出日】 平成16年 6月 1日  
【あて先】 特許庁長官 殿  
【事件の表示】  
【出願番号】 特願2004- 88909  
【承継人】  
【住所又は居所】 長野県松本市旭三丁目 1 番 1 号  
【氏名又は名称】 国立大学法人信州大学  
【代表者】 小宮山 淳  
【連絡先】 部署名 総務部研究推進課 担当者 堀 洋一 電話番号 02  
63-37-2072  
【その他】 15文科会第1999号に基づく承継

【書類名】	手続補正書
【提出日】	平成16年 9月 8日
【あて先】	特許庁長官 殿
【事件の表示】	
【出願番号】	特願2004- 88909
【補正をする者】	
【識別番号】	504180239
【氏名又は名称】	国立大学法人信州大学
【代表者】	小宮山 淳
【発送番号】	035217
【手続補正1】	
【補正対象書類名】	特許願
【補正対象項目名】	特許出願人
【補正方法】	変更
【補正の内容】	
【特許出願人】	
【識別番号】	000005315
【氏名又は名称】	保土谷化学工業株式会社
【代表者】	岡本 ▲昂▼
【特許出願人】	
【識別番号】	597100974
【氏名又は名称】	信州大学長
【代表者】	小宮山 淳

出願人履歴

0 0 0 0 0 5 3 1 5

20011113

住所変更

神奈川県川崎市幸区堀川町 6 6 番地 2

保土谷化学工業株式会社

5 9 7 1 0 0 9 7 4

19970715

新規登録

5 9 9 1 7 3 3 8 7

長野県松本市旭 3 - 1 - 1

信州大学長

5 0 4 1 8 0 2 3 9

20040510

新規登録

長野県松本市旭三丁目 1 番 1 号

国立大学法人信州大学